

## STUDI MORFOLOGI SILIKA HASIL KALSIKASI DENGAN METODE SINTESIS HIDROTERMAL-KOPRESIPITASI

**Zumrotin Nisa**

Fisika, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Negeri Surabaya  
nisazumrotin@gmail.com

**Munasir, M.Si**

Fisika, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Negeri Surabaya  
nasir1769@gmail.com

### Abstrak

Keunikan material padat adalah memiliki beberapa macam bentuk partikel dan struktur pori, tentunya mempengaruhi sifat bahan seperti densitas, konduktivitas termal, dan kekuatannya. Salah satu material tersebut adalah nanosilika, yaitu bahan oksida golongan IVA yang memiliki ciri struktur utama tetrahedron, yaitu setiap satu atom silikon berikatan tunggal dengan empat atom oksigen yang ukurannya berorde nano. Pada penelitian ini nanosilika diperoleh dari hasil sintesis pasir Bancar menggunakan metode hidrotermal-kopresipitasi dengan waktu hidrotermal 12 jam, tanpa dan dengan kalsinasi pada suhu 900°C dan 1100°C selama 10 jam. Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan dapat dilaporkan bahwa silika tanpa kalsinasi berstruktur amorf, sedangkan setelah kalsinasi berstruktur kristal. Ketiga nanosilika memiliki bentuk partikel seperti bola atau *spherical* dengan ukuran yang berbeda. Semakin tinggi suhu kalsinasi yang digunakan, ukuran partikel silika semakin besar karena adanya aglomerasi membentuk partikel yang lebih besar. Mengacu aturan IUPAC diperoleh struktur pori silika tanpa kalsinasi berbentuk silinder sedangkan setelah kalsinasi berbentuk seperti leher sempit dan bodi lebar disebut botol tinta atau *ink-bottle*. Semakin tinggi suhu kalsinasi volume dan luas permukaan pori akan semakin kecil, sedangkan diameter pori bergantung pada strukturnya.

**Kata kunci:** nanosilika, metode hidrotermal-kopresipitasi, bentuk partikel, ukuran partikel, struktur pori.

### Abstract

Solid materials uniqueness are having several kinds form particles and pore structures, affect certainly the properties of materials as density, thermal conductivity, and his strength. One of the materials is nanosilica, that is oxide material of IVA group have the main structure a tetrahedron, that every one atom of silicon bonded single with four atoms of oxygen which were nanoscale. On this research nanosilica obtained Bancar sand using hydrothermal-coprecipitation synthesis method with hidrotermal time is 12 hours, without and with calcination at temperature 900°C and 1100°C for 10 hours. The shape and size of nanosilica particles analyzed through SEM characterization whereas pore structure analyzed through BET characterization, supported with XRD characterization. Based on studies that have reported that silica without calcination has amorphous structure, while the crystal structure after calcination. Nanosilica has a particles shape like a ball or spherical with different sizes. The higher of calcination temperatures are used, size of the nanosilica particles are larger due to agglomeration to form larger particles. Pore structures of silica particles without calcination are cylindrical while after calcination shaped like a narrow neck and wide body called ink-bottle. The higher of the calcination temperature, pore volume and surface area will be smaller, while the pore diameter depends on its structure.

**Keywords:** nanosilica, hydrothermal-coprecipitation method, particle shape, particle size, pore structure.

### PENDAHULUAN

Material padat memiliki bentuk dan ukuran dengan orde yang berbeda-beda, seperti bulat atau *spherical*, silinder, dan kubus dengan orde nano atau mikro. Tentunya bentuk dan ukuran mempengaruhi sifat bahan tersebut. Selain itu, sebagian besar material padat memiliki pori-pori, dan sangat sulit ditemukan atau dibuat material padat tanpa pori. Densitas, konduktivitas termal, dan

kekuatan merupakan sifat fisik yang bergantung pada struktur pori. Rekayasa porositas bahan merupakan salah satu hal terpenting pada industri besar untuk mendesain pembuatan katalis, adsorben, membran, dan keramik. Selain itu, porositas merupakan salah satu faktor yang mempengaruhi interaksi fisik material dengan gas ataupun cairan (Rouquerol dkk, 1994).

Struktur pori dapat ditentukan dengan memanfaatkan proses adsorpsi/desorpsi isoteremis pada gas. Pada proses

tersebut terjadi interaksi gas dengan adsorben yang ditandai dengan adanya peningkatan tekanan telatif dan banyaknya gas yang terserap oleh adsorben. Berdasarkan ukuran pori IUPAC (1985) membagi material berpori menjadi tiga kategori yaitu mikropori (berdiameter  $< 2$  nm), mesopori (berdiameter  $2 - 50$  nm), dan makropori (berdiameter  $> 50$  nm).

Nanosilika serbuk merupakan salah satu material padat yang memiliki beberapa bentuk yang berbeda dan berpori. Ui (2009) melaporkan beberapa bentuk partikel silika antara lain kubus, batang dan bundaran. Quercia (2013) melaporkan beberapa nano dan mikro silika amorf sebagai bahan pembuat beton memiliki bentuk bulat dengan kategori material mesopori.

Silika merupakan bahan oksida golongan IVA yang memiliki ciri struktur utama tetrahedron, yaitu setiap satu atom silikon berikatan tunggal dengan empat atom oksigen (House, 2008). Silika banyak ditemukan pada beberapa mineral alam seperti pasir yang biasanya berwarna putih kecoklatan. Silika dari mineral alam dapat disintesis menjadi nanosilika berstruktur amorf. Berdasarkan penelitian terdahulu, terdapat beberapa metode sintesis nanosilika dari bahan alam maupun limbah rumah tangga, antara lain *sol gel* pada  $600^{\circ}\text{C}$  (Le dkk, 2013), *alkali fusion* pada  $550^{\circ}\text{C}$  (Mori, 2003) kopresipitasi hanya pada suhu  $80^{\circ}\text{C}$  (Hadi dkk, 2011). Dapat diketahui metode kopresipitasi lebih hemat energi sehingga relatif mudah dilakukan.

Pada umumnya nanosilika berstruktur tidak teratur atau amorf tetapi jika dikenai suhu tinggi yang tidak melebihi titik lelehnya atau pengaruh tekanan, struktur silika berubah menjadi kristal. Beberapa penelitian terdahulu melaporkan kekristalan nanosilika hasil kalsinasi dari hasil uji XRD yang menghasilkan parameter persentase fasa yang terbentuk dan analisis porositas pori pada nanosilika tanpa kalsinasi. Sedangkan pada penelitian ini dilaporkan morfologi (bentuk dan ukuran) partikel serta porositas nanosilika dari bahan dasar pasir Bancar sebelum dan sesudah kalsinasi ( $900^{\circ}\text{C}$  dan  $1100^{\circ}\text{C}$ ) yang disintesis dengan metode hidrotermal-kopresipitasi dengan waktu proses hidrotermal lebih lama yaitu 12 jam.

## METODE

### Alat dan Bahan

Alat yang digunakan pada penelitian ini antara lain Mortar dan alu, *Magnetic stirrer*, Gelas kimia, Kertas saring, Spatula, Timbangan digital, Lampu, Kertas pH meter dan *Furnace*. Sedangkan bahan yang digunakan antara lain Pasir Bancar, HCl 2M, NaOH 7M, dan aquades. Sampel hasil sintesis sebelum dan sesudah kalsinasi dikarakterisasi dengan XRD untuk mengetahui struktur kristal silika, SEM untuk mengetahui bentuk dan ukuran partikel, dan BET untuk mengetahui porositasnya.

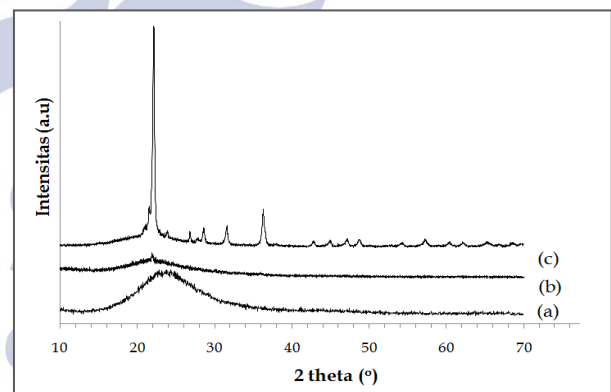
### Metode Sintesis Nanosilika

Dibutuhkan dua metode sehingga didapatkan nanosilika, yaitu hidrotermal dan kopresipitasi. Sebelum kedua metode dilakukan, pasir Bancar direndam dalam HCl 2M selama 2 jam. Proses hidrotermal dilakukan pada 4 gram pasir yang direaksikan dengan NaOH 7M sebanyak 60 ml. pereaksian dilakukan pada suhu  $80^{\circ}\text{C}$  selama 12 jam, menghasilkan sodium silikat yang kemudian dilarutkan ke dalam air 250 ml. Sedangkan proses kopresipitasi dilakukan titrasi sodium silikat hasil proses hidrotermal dengan HCl 2M hingga terbentuk endapan berwarna putih dan pH larutan  $\sim 1$  (Hadi dkk, 2011). Endapan dicuci sebanyak 10 kali dalam aquades 300 ml. kemudian dikeringkan sehingga terbentuk serbuk silika. Setelah itu serbuk silika dikalsinasi pada suhu  $900^{\circ}\text{C}$  dan  $1100^{\circ}\text{C}$  Selama 10 jam.

## HASIL DAN PEMBAHASAN

### Hasil Uji XRD

Gambar 1 merupakan grafik hasil karakterisasi XRD. Waktu hidrotermal 12 jam ternyata belum mampu mengubah struktur silika menjadi kristalin, sehingga dilakukan proses kalsinasi dengan memilih suhu  $900^{\circ}\text{C}$  dan  $1100^{\circ}\text{C}$ . Silika yang dihasilkan lebih banyak yaitu 3,773 gram, jika dibandingkan dengan penelitian Hadi (2011) hanya 0,6182 gram, dengan puncak terletak pada  $2\theta = 22,84^{\circ}$ . Hal ini dikarenakan proses pereaksian pasir dengan NaOH lebih lama sehingga sodium silikat yang terbentuk lebih banyak.



**Gambar 1** Hasil uji XRD silika (a) tanpa kalsinasi, (b) kalsinasi  $900^{\circ}\text{C}$ , dan (c) kalsinasi  $1100^{\circ}\text{C}$

Terlihat pada gambar 1, proses kalsinasi mampu mengubah struktur silika menjadi material kristalin. Berdasarkan diagram fasa silika, transformasi fasa tridimit menuju kristobalit terjadi pada suhu  $1470^{\circ}\text{C}$  dengan tekanan tertentu, sedangkan pada penelitian ini kalsinasi menggunakan suhu  $1100^{\circ}\text{C}$  tanpa mengontrol tekanan, menghasilkan silika kristalin dengan fasa kristobalit yang lebih dominan dari pada kuarsa dan tridimit. Hal ini dikarenakan silika hasil sintesis dengan metode

hidrotermal-kopresipitasi pada penelitian Izzati dkk (2013) memiliki ukuran nano sehingga luas permukaannya semakin besar dan temperatur yang dibutuhkan untuk mengubah strukturnya semakin kecil.

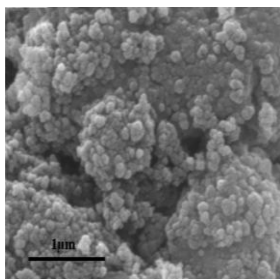
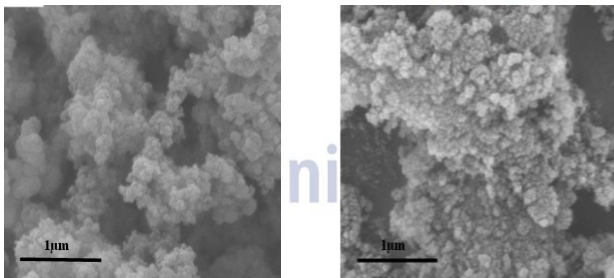
### Hasil Uji SEM

Berdasarkan gambar 2 dapat diketahui bahwa partikel silika hasil sintesis memiliki bentuk prtikel seperti bola atau *spherical* dengan ukuran yang berbeda. Partikel silika hsil kalsinasi suhu 1100°C terlihat memiliki ukuran yang lebih besar. Untuk mengetahui lebih jelas distribusi rata-rata ukuran partikel silika sebelum dan sesudah kalsinasi, dilakukan analisis menggunakan *software Imge-J* seperti tabel 1.

**Tabel 1** Hasil analisis Image-J

Silika	Luas (nm <sup>2</sup> )			Diameter (nm)		
	Min	Rata-rata	Maks	Min	Rata-rata	Maks
Tanpa kalsinasi	3,2	291,6	857000	2,03	19,2	1044.8
Kalsinasi 900°C	3,3	391,9	3079000	2,08	22,3	1980.4
Kalsinasi 1100°C	3,2	594,0	6720000	2,04	27,5	2925.8

Berdasarkan tabel 1, diameter rata-rata silika hasil kalsinasi pada suhu 1100°C lebih besar jik dibanding dengan silika tanpa kalsinasi dan kalsinasi 900°C. Semakin tinggi suhu kalsinasi maka partikel silika yang dihasilkan lebih besar. Hal ini dikarenakan kalsinasi dapat memperkecil batas butir antar partikel, semakin tinggi suhu kalsinasi batas butir antar partikel semakin tidak terlihat, sehingga beraglomersi membentuk partikel yang lebih besar.

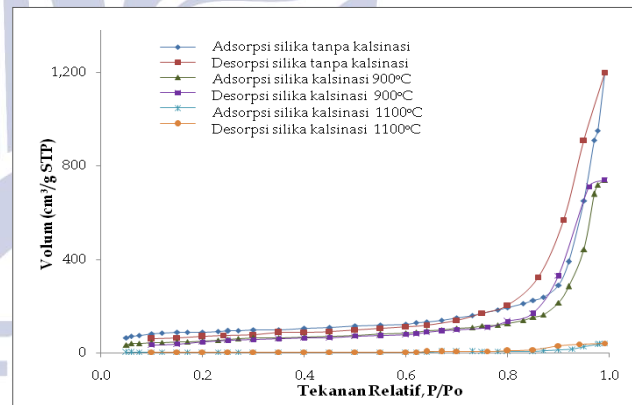


**Gambar 2** Hasil uji SEM silika (a) tanpa kalsinasi, (b) kalsinasi 900°C, dan (c) kalsinasi 1100°C.

### Hasil Uji BET

Gambar 3 merupakan grafik adsorpsi/desorpsi nitrogen isotermis hasil karakterisasi BET silika. Silika tanpa kalsinasi mengalami puncak volume adsorpsi/desorpsi nitrogen lebih banyak yaitu ~ 1200 cm<sup>3</sup>/g, terbukti bahwa silika merupakan material berpori. Sedangkan silika hasil kalsinasi 900°C dan 1100°C memiliki puncak volume pori yang lebih kecil yaitu ~ 740 cm<sup>3</sup>/g, dan ~ 42 cm<sup>3</sup>/g. Aglomerasi yang terjadi ketika proses kalsinasi juga memicu terbentuknya pori silika. Semakin besar suhu kalsinasi maka semakin kecil volume pori yang terbentuk, karena suhu kalsinasi menyebabkan partikel mengembang sehingga mempengaruhi hilangnya batas butir antar partikel, terjadi aglomerasi, dan memperkecil ukuran pori.

Menurut IUPAC (1985) ketiga grafik adsorpsi/desorpsi silika termasuk dalam grafik tipe IV, yang menunjukkan bahwa material berpori yang dikenai gas nitrogen termasuk dalam kategori mesopori yang memiliki bentuk partikel seperti bola atau *spherical* (Quercia, 2013), seperti ditunjukkan pada analisis SEM. *Hysteresis loop* untuk silika tanpa kalsinasi termasuk dalam tipe H1 dengan dominan struktur porinya adalah berbentuk silinder, sedangkan silika hasil kalsinasi termasuk dalam tipe H2 dengan dominan struktur pori memiliki leher sempit dan bodi lebar seperti botol tinta atau *ink-bottle*.



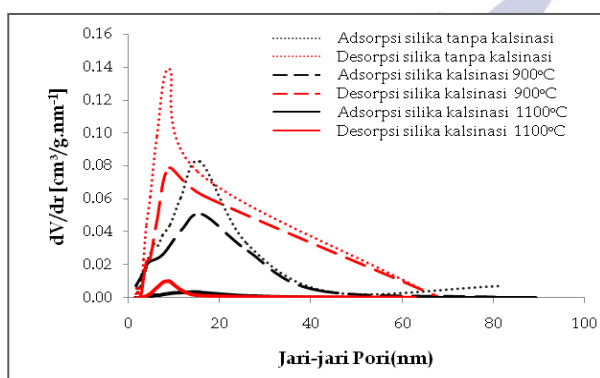
**Gambar 3** Adsorpsi/desorpsi nitrogen isotermis silika

Gambar Adsorpsi/desorpsi nitrogen isotermis silika juga dapat digunakan untuk menentukan persamaan BET silika. Persamaan BET digambarkan dari data linier yang terletak pada tekanan relatif antara 0,1 – 0,35 yang dapat digunakan untuk menentukan surface area pori menggunakan persamaan dasar BET dengan berat molekul dan penampang melintang nitrogen masing-masing 28,013 gram dan 16,2 Å<sup>2</sup>.

Silika hasil kalsinasi pada suhu 1100°C memiliki luas permukaan pori lebih kecil dari pada silika kalsinasi 900°C dan tanpa kalsinasi. Hal ini dikarenakan silika hasil kalsinasi mengalami aglomerasi beberapa partikel silika membentuk butiran yang lebih besar sehingga luas permukaan pori menjadi lebih sempit.



Gambar 5 menunjukkan distribusi ukuran pori pada silika tanpa kalsinasi, kalsinasi suhu 900°C dan 1100°C berdasarkan cabang adsorpsi dan desorpsi dengan metode Barret-Joyner-Halenda (BJH). Silika tanpa kalsinasi memiliki diameter pori antara 18,138 – 31,396 nm, sedangkan silika hasil kalsinasi 900°C memiliki diameter pori antara 18,062 – 32,334 nm dan silika kalsinasi 1100°C memiliki diameter pori antara 17,794 – 31,716 nm. Ketiga sampel termasuk dalam kategori material mesopori. Distribusi ukuran pori silika dipengaruhi oleh banyaknya grup silanol ( $\equiv\text{Si-OH}$ ) pada permukaan silika (Quercia dkk, 2013). Proses kalsinasi mampu mereduksi grup silanol pada permukaan silika sehingga terjadi aglomerasi membentuk partikel silika menjadi lebih besar, dan memperkecil pori-porinya.



**Gambar 5** Analisis distribusi jari-jari pori silika dengan metode BJH

Semakin tinggi suhu kalsinasi maka akan memperkecil volume, luas permukaan, dan jari-jari pori. Tetapi pada silika hasil kalsinasi memiliki jari-jari adsorpsi yang lebih besar dari pada silika tanpa kalsinasi. Hal ini dikarenakan adanya perbedaan bentuk pori silika tanpa kalsinasi dan setelah kalsinasi. Silika hasil kalsinasi memiliki bentuk seperti botol tinta dengan volume yang kecil namun memiliki diameter yang lebih besar dari pada silika tanpa kalsinasi yang dominan berbentuk silinder. Tentunya rekayasa porositas akan terhenti pada suhu kalsinasi tertentu, dimana material hasil kalsinasi memiliki sedikit pori namun mengalami penurunan kualitas bahan.

## PENUTUP

### Simpulan

Nanosilika amorf dapat disintesis dari pasir pantai Bancar Tuban dengan metode hidrotermal-kopresipitasi. Diperoleh silika dengan bentuk seperti bola atau *spherical* dengan diameter rata-rata partikel sebesar 19,2 nm. Silika kristalin diperoleh dari proses kalsinasi dengan suhu 900°C dan 1100°C yang juga memiliki bentuk partikel seperti bola atau *spherical* namun diameter rata-rata partikelnya lebih besar masing-masing yaitu 22,3 nm dan 27,5 nm. Nanosilika tanpa kalsinasi memiliki luas

permukaan pori 293,632 m<sup>2</sup>/g, volume pori 1,8 - 1,9 cm<sup>3</sup>/g, dan diameter pori antara 18,1 – 31,3 nm, dengan struktur pori rata-rata berbentuk silinder. Sedangkan nanosilika hasil kalsinasi 900°C dan 1100°C memiliki luas permukaan pori masing-masing adalah 182,868 m<sup>2</sup>/g dan 10,240 m<sup>2</sup>/g, volum pori 1,1 – 1,2 cm<sup>3</sup>/g dan 0,06 -0,07 cm<sup>3</sup>/g, dan diameter pori 18,062 – 32,334 nm dan 17,794 – 31,716 nm dengan struktur pori rata-rata memiliki bentuk leher sempit dan bodi lebar seperti botol tinta atau *ink-bottle*. Ketiganya merupakan material mesopori. Semakin tinggi suhu kalsinasi menyebabkan luas permukaan partikel silika semakin besar, volume dan luas permukaan pori semakin kecil. Sedangkan diameter pori bergantung pada struktur pori yang terbentuk.

## Saran

Penelitian lanjutan menggunakan topik morfologi silika supaya mendapatkan hasil yang lebih baik dan tepat sasaran maka disarankan untuk melakukan manipulasi suhu kalsinasi yang lebih banyak dengan suhu lebih tinggi, dan dilakukan pengujian dengan TEM sehingga morfologi berupa bentuk partikel terlihat lebih jelas.

## DAFTAR PUSTAKA

- Hadi, S. Munasir, dan Triwikantoro. (2011). Sintesis Silika Berbasis Pasir Alam Bancar Menggunakan Metode Kopresipitasi. Surabaya: ITS.
- House, James E. 2008. *Inorganic Chemistry*. USA: Academic Press is an imprint of Elsevier.
- International union of Pure and Applied chemistry.1985. Reporting Physisorption Data for Gas/Solid Systems with Special Reference to the Determination of Surface Area and Porosity. *Journal of Pure & App. Chem.*, Vol. 57, No. 4, pp. 603—619.
- Izzati, H. N., Fitratun Nisak, dan Munasir. 2013. Sintesis dan Karakterisasi Kekristalan Nanosilika Berbasis Pasir Bancar. *Jurnal Inovasi Fisika Indonesia*. Vol. 02 (03): hal 19-22.
- Le, Van H., Chi Nhan Thuc, and Huy Ha Thuc. 2013. Synthesis of silica nanoparticles from Vietnamese rice husk by sol-gel method. *Journal of Nanoscale Research*. Vol. 58 (8): hal. 1-10
- Mori, Hidetsugu. 2003. Extraction of Silicon Dioxide from Waste Colored Glasses by Alkali Fusion Using Sodium Hydroxide. *Journal of the Ceramic Society of Japan*. Vol. 111 (6): hal. 376-31.
- Quercia G., A. Lazaro, J.W. Geus, dan H.J.H. Brouwers. 2013. Characterization of Morphology and Texture Of Several Amorphous Nano-Silica Particles Used in Concrete. *Cement & Concrete Composites*. Vol. 44: hal 77–92.
- Rouquerol, j., Avnir, W. Fairbridge, H. Everett, j. H. Haynes, n. Pernicone, j. D. F. Ramsay k. S. W. Sing dan k. K. Unger. 1994. International Union of Pure and Applied Chemistry (Iupac), Recommendations for the Characterization of Porous Solids. *Journal of Pure & Appl. Chern.*, Vol. 66, No. 8, pp. 1739-1758, 1994.